

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 03-238758

(43)Date of publication of application : 24.10.1991

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 8/12

(21)Application number : 02-032334

(71)Applicant : NKK CORP

(22)Date of filing : 15.02.1990

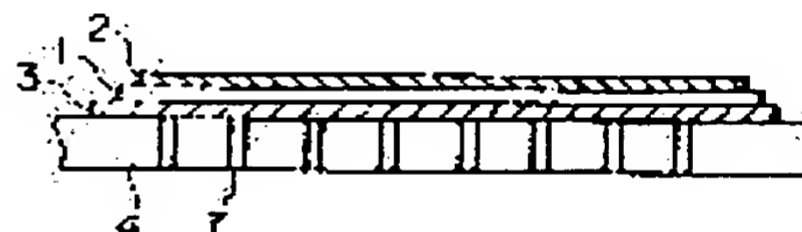
(72)Inventor : MIHARA HIROSHI
NAKAGAWA HIROTAKA
UEMOTO YOSHIHITO
TSUNEIZUMI HIROSHI
KADOWAKI TAKUYA
MATSUDA EIJI
YOKOSUKA KOICHI

(54) FUEL CELL OF SOLID ELECTROLYTE TYPE

(57)Abstract:

PURPOSE: To simplify the construction of a fuel cell and reduce the internal resistance thereof by forming the films of a fuel electrode, a solid electrolyte and an air electrode in sequence on one side of a dense substrate comprising the same material as a fuel electrode part and having many through-holes.

CONSTITUTION: In a solid electrolyte type fuel cell comprising a solid electrolyte 1, an air electrode 2 and a fuel electrode 3, one side of a dense substrate comprising the same material as the fuel electrode 3 and having many through-holes is applied with the films of the fuel electrode 3, the solid electrolyte 1 and the air electrode 2 respectively in that order. As the substrate is manufactured according to the aforesaid process, the high strength and small thickness thereof can be ensured. Also, even for a large fuel cell, compact construction can be applied. In addition, the internal resistance of the fuel cell can be lowered and the conductivity thereof can be increased, thereby improving cell performance.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報(A)

平3-238758

⑬ Int. Cl.⁵

H 01 M 8/02
8/12

識別記号

E

庁内整理番号

9062-5H
9062-5H

⑭ 公開 平成3年(1991)10月24日

審査請求 未請求 請求項の数 5 (全6頁)

⑮ 発明の名称 固体電解質型燃料電池

⑯ 特 願 平2-32334

⑰ 出 願 平2(1990)2月15日

⑱ 発 明 者 三 原 浩 東京都千代田区丸の内1丁目1番2号 日本鋼管株式会社
内

⑲ 発 明 者 中 川 大 隆 東京都千代田区丸の内1丁目1番2号 日本鋼管株式会社
内

⑳ 発 明 者 上 元 好 仁 東京都千代田区丸の内1丁目1番2号 日本鋼管株式会社
内

㉑ 発 明 者 常 泉 浩 志 東京都千代田区丸の内1丁目1番2号 日本鋼管株式会社
内

㉒ 出 願 人 日本鋼管株式会社 東京都千代田区丸の内1丁目1番2号

㉓ 代 理 人 弁理士 佐々木 宗治 外1名

最終頁に続く

明 細 書

1. 発明の名称

固体電解質型燃料電池

2. 特許請求の範囲

(1) 固体電解質、空気電極及び燃料電極とから成る固体電解質型燃料電池において、該電池の燃料電極部の材料と同一の材料から成り、且つ多数の貫通孔を有する緻密な基板の片面上に前記燃料電極、固体電解質及び空気電極の順に成膜して成ることを特徴とする固体電解質型燃料電池。

(2) 前記燃料電極部材料が、ニッケル・ジルコニア・サーメットから成ることを特徴とする請求項1記載の固体電解質型燃料電池。

(3) 前記基板がテーバー状の貫通孔を設けて成ることを特徴とする請求項1又は2記載の固体電解質型燃料電池。

(4) 前記基板の貫通孔の一方に溝を加えたことを特徴とする請求項1～3記載の固体電解質型燃料電池。

(5) セルの集電体として溝付きセパレータを使

用することを特徴とする請求項1～4記載の固体電解質型燃料電池。

3. 発明の詳細な説明

[産業上の利用分野]

本発明は、固体電解質型燃料電池特にその構造に関するものである。

[従来の技術]

近時、化学反応の自由エネルギー変化を、直接に電気エネルギーに変換する装置として、燃料電池が注目され開発されている。燃料電池は、通常の化学電池と規を一にするものであるが、異なるところは電極の活物質を電池容器内に収めておらず、負極には燃料を、また正極には燃料を酸化する物質を連続的に供給して発電することであり、有力な直接発電システムの一つとして商用化が積極的に検討されている。これら燃料電池の中で第3世代燃料電池として、安定化ジルコニアを電解質とする固体電解質型燃料電池が注目されている。

即ちジルコニア(ZrO_2)は、1150℃付近で単斜晶形から正方晶形への結晶構造の転移があり、

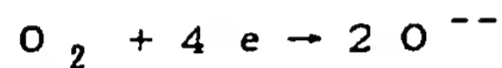
この際、約9%の容積変化が現れる。この容積変化を防ぐために、カルシウム、イットリウムなどの酸化物をジルコニアに固溶させることが行われ、このような固溶体を安定化ジルコニアと称している。

第6図は、この様な燃料電池の原理の説明図である。

第6図に示すように、例えば安定化ジルコニアのような固体電解質1の一方の表面に空気極2が正極として、そして他方の表面に負極として燃料極3が設けられている。

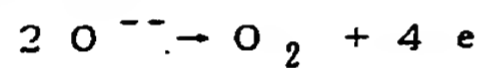
空気極2に空気(O_2)を流し、燃料極3に燃料ガス(H_2 , CO)を流すと、

空気極2側において、



の反応が起こり、

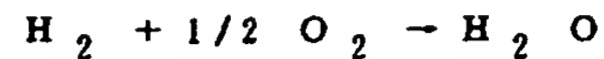
燃料極3側において、



の反応が生ずる。

上記反応により発生した電子(e^-)は、燃料

極3側から空気極2に向けて移動し、正極である空気極2と、負極である燃料極3との間に電気が流れる。



の反応で、同時に発生した水は系外に排出される。

固体電解質型燃料電池は、上述のように構成されているが、そのセル構造を実現するために、従来固体電解質1を基体とするか、または、固体電解質1及び電極以外の別の物質を基体としていた。

第7図は、固体電解質を基体とした場合の一例を示す断面図である。

第7図に示すように、基体として十分な厚さを有する安定化ジルコニアからなる固体電解質1の一方の表面には、酸化ニッケル粉体を高温で溶射した多孔質体からなる薄い燃料極3が設けられ、固体電解質1の他方の表面には、例えば $LaMnO_3$ のようなセラミックス多孔質体からなる薄い空気極2が設けられている。

第8図は、固体電解質1及び電極以外の別の物質を基体とした場合の一例を示す断面図である。

第8図に示すように、セラミックス、例えば、アルミナ、ジルコニア等の多孔質体からなる十分な厚さの基体4の一方の表面上に、各々薄いNi多孔質体からなる燃料極3と、安定化ジルコニアからなる固体電解質1と、セラミックス多孔質体からなる空気極2とが積層されている。

燃料電池は、上述のように、固体電解質1、空気極2、燃料極3及び基体4によって構成された1つのセルを、複数段積み重ねることによって形成される。

第9図は、この様な複数段のセルからなる燃料電池の一例を示す概略断面の説明図である。

第9図に示すように、固体電解質1の一方の表面に、セラミックス多孔質焼結体からなる板状の空気極2が設けられ、固体電解質1の他方の表面に、Ni多孔質焼結体からなる板状の燃料極3が設けられている。

空気極2及び燃料極3の各々の外側には、波板状の耐熱金属板からなる集電体5が設けられ、且つ、集電体5の外側には、平板状の耐熱金属板か

らなるインターコネクター(セパレータ)6が設けられている。

空気極2に空気または酸素をそして燃料極3に水素または燃料ガスを供給することにより前記のように発生した電気は、波板状の集電体5によって集電され、インターコネクター(セパレータ)6により各セルの電気を集電する。

これら安定化ジルコニアなどを用いた酸化物焼結体固体電解質型燃料電池の有利な点は、全固体構造をとることが出来ると共に、電極における反応が、溶融炭酸塩電池よりも簡単なことである。
[発明が解決しようとする課題]

前述の第8図に示すような固体電解質1以外の別の物質を基体とした場合には、複数の電池を直列に接続する場合には、外部で接続しなければならないため構造が複雑になり、且つ電極内を電流が平行に流れるため、電池の内部抵抗が増加する等の問題を生ずる。

以上の如き、従来の固体電解質型燃料電池において、多孔質基板をその後の成膜のための強度メ

ンバーとして使用すると共に、燃料電極としての機能を持たせる場合には、次のような問題が生ずる。

1) 燃料電極として効率良く電気化学反応をさせるためには、固体電解質と燃料電極の界面における燃料電極の構造は、できるだけ微細な粒子で構成される多孔質とすることにより、固体電解質、電極及びガスの三相界面をふやす必要がある。

こうした微細な構造を持つ燃料電極を、その後続く成膜のための強度メンバーとするために所定の厚さ(2mm程度)にすると、微細なポアのために基板内のガス透過性が悪くなり、その結果良好な電池が得られない。

2) 上記と逆に、基板内のガス透過性を向上させるために、大きな粒子による大きなポアを持つ多孔質とすると、三相界面が減少し、良好な電池が得られない。

3) 当然のことながら、上記1)と2)を組み合わせ、大きなポアを持つ多孔質の表面付近を微細な構造を持つ電極材とする方法も考えられるが、

別な態様例として基板がテーバー状の貫通孔を設けて成り、

さらに別な態様例として、基板の貫通孔の一方に溝を加えて成る固体電解質型燃料電池であり、

またさらに、前述の構成からなるセルの集電体として溝付きセパレータを使用することを特徴とする固体電解質型燃料電池である。

[作用]

本発明の固体電解質型燃料電池によれば、

- 1) 多数の貫通孔を有する基板を使うために、燃料ガスの透過性が良好となる。
- 2) 貫通孔に溝を付けることにより、電極部分へのガス透過性が更に向上する。
- 3) 緻密な材料で基板を製作するため、強度が高く、薄い材料とすることができ、大型化の場合にもコンパクトな構造となる。
- 4) また緻密な材料で基板を製作するため、この部分の導電率が高く、電池性能が向上する。
- 5) 電気化学反応に直接関与する固体電解質界面の燃料電極は微細な構造となるので、電池性能

大きなポアを持つ多孔質は、緻密なものに比べて強度が低いので、その分厚くする必要があり、ガス透過性を悪くすることになる。また、多孔質体は緻密なものに比べて導電率が落ちるので、電池性能を下げる原因ともなる。

本発明は、上記の固体電解質型燃料電池における問題点を解決する、構造が簡単で、且つ電池の内部抵抗が小さい電池を提供することを目的とするものである。

[課題を解決するための手段]

本発明の固体電解質型燃料電池は、

固体電解質、空気電極及び燃料電極とから成る固体電解質型燃料電池において、該電池の燃料電極部の材料と同一の材料から成り、且つ多数の貫通孔を有する緻密な基板の片面上に前記燃料電極、固体電解質及び空気電極の順に成膜して成ることを特徴とする固体電解質型燃料電池である。

そして、上記の燃料電極材料が、ニッケル・ジルコニア・サーメットから成る固体電解質型燃料電池であり、また

が向上する。

次に本発明の実施例について述べる。

[実施例]

第1図(a)~(e)は本発明の電池の実施例である固体電解質型燃料電池の製作を示す説明図、第2図、及び第3図は別の実施例である基体(板)を示す説明図、第4図(a)、(b)は溝の平面を示す説明図、第5図はセル及び集電体の構成を示す説明図である。

図において、1は固体電解質、2は空気極、3は燃料極、4は基体(板)、4aはグリーンシート、5は集電体、6はインターコネクター(セパレータ)、7は貫通孔、8は溝、9は溝付きセパレータ、10はセルである。

- 1) 第1図(a)に示すように、厚さ1~2mmのニッケル・ジルコニア・サーメットのグリーンシート4aを成形する。
- 2) 第1図(b)に示すように、グリーンシート4aに径0.5mmの貫通孔7を開ける。
- 3) 次に、第1図(c)に示すように、グリーンシ

ート4aを1200℃にて焼成し基板4を得る。

4) 第1図(d)に示すように、基板4上に厚さ30～40 μ mのニッケル・ジルコニア・サーメットの微細な燃料電極3を溶射し製作する。

5) 次いで、固体電解質1をPVD法により蒸着し、その上に、ランタンとマンガンの複合酸化物(LaMnO_3)のようなセラミックス多孔質焼結体を溶射し、空気電極2を設ける。

以上のように構成した電池に、要すれば、さらに空気極2及び燃料極3の各々の外側に、第9図に示すように、Cr16%、Fe7%を含むニッケル合金(インコネル600)のような波板状の耐熱金属板からなる集電体5を設け、且つ、集電体の外側には、単電池を直列に結ぶ導電体として、電解質1の膨脹係数に近い、例えばマグネシウムをドーブした酸化ランタンクロム($\text{LaCr}_{0.9}\text{Mg}_{0.1}\text{O}_3$)のセラミックスからなる平板状のセパレータ(インターコネクター)6を設け、固体電解質型燃料電池を完成せしめる。

かかる固体電解質型燃料電池において、空気極

2に空気または酸素を、そして燃料極3に水素または燃料ガスを供給することにより発生した電気は、波板状の集電体5によって集電され、セパレータ6により各セル10の電気を集電する。

この電池の前記の1)の工程において、第2図に示すように、グリーンシート4aにテーパ状の貫通孔7を設けて、以下同じ工程にて製作された固体電解質型電池は、この貫通孔7により、ガス透過性を高めることが出来る。

又、上記の貫通孔7の上部に、第3図並びに第4図(a),(b)に示すように、溝8を追加させるとより電池反応を促進することが出来る。

更に別の態様例として第5図に示す如く、溝付きセパレータ9を用いると構造が簡単で好ましい。

なお、本発明の電極は第1図に示すような平板型固体電解質燃料電池に限らず、多管型固体電解質燃料電池にも適用出来るものである。

[発明の効果]

本発明の固体電解質燃料電池によれば、

1) 強度を有する基板上に、電池の構成膜3層を

成膜することにより、大面積の電池製作が可能となる。

2) 基板に多数の貫通孔を設けたため、燃料ガスの透過性が向上し、電池性能が向上する。

3) 基板は、比較的緻密な基板を使うために多孔質基板より導電性が高く、電池性能が向上する。

4) 比較的緻密な基板を使うため、強度が上がり、多孔質基板を使う場合より、薄くすることができ、コンパクトな電池が得られる。

5) 燃料電極用材料と基板の材料を同じものとしたため、相互のなじみが良く、熱膨脹率の差による損傷がなく、安定した性能の電池が得られる。等の効果を奏するものである。

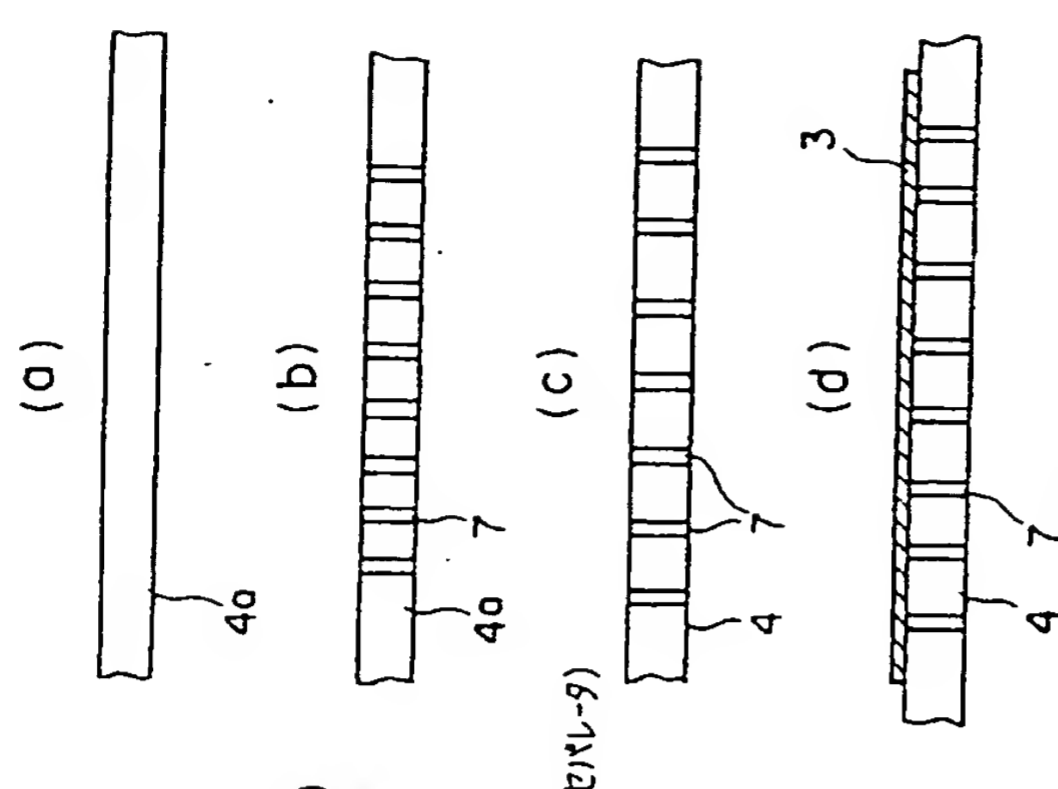
4. 図面の簡単な説明

第1図(a)～(e)は本発明の電池の実施例である固体電解質型燃料電池の製作を示す説明図、第2図及び第3図は電池基板の別の実施例の説明図、第4図(a),(b)は溝の平面を示す説明図、第5図はセル及び集電体の構成を示す説明図、第6図は燃料電池の原理の説明図、第7図及び第8図は従

来の固体電解質型燃料電池の説明図、第9図は、従来の複数段のセルからなる燃料電池の一例を示す概略断面の説明図である。

図において、1:固体電解質、2:空気極、3:燃料極、4:基体(板)、4a:グリーンシート5:集電体、6:インターコネクター(セパレータ)、7:貫通孔、8:溝、9:溝付きセパレータ、10:セル。

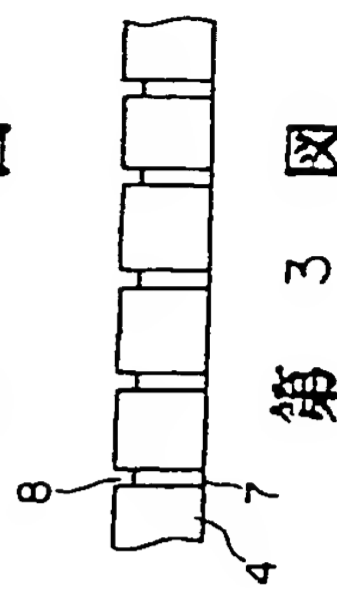
代理人 弁理士 佐々木宗治



第 1 図

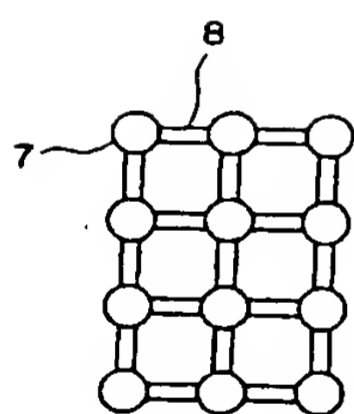


第 2 図

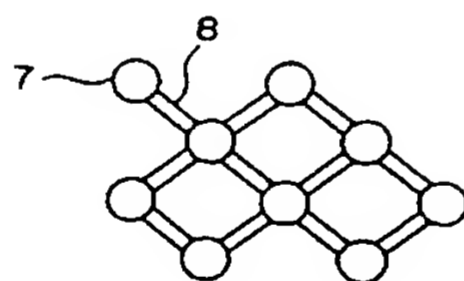


第 3 図

- 1: 固体電解質
2: 空気極 (正極)
3: 燃料極 (負極)
4: 基体 (板)
4a: グリッドシート
5: 集電体
6: インターコネクター (セパレータ)
7: 貫通孔
8: 溝
9: 溝付セパレータ
10: セル

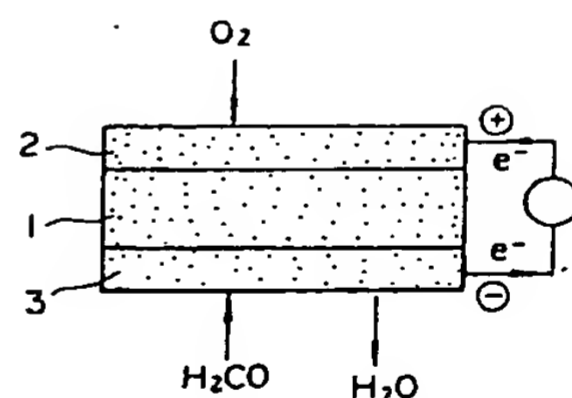


(a)

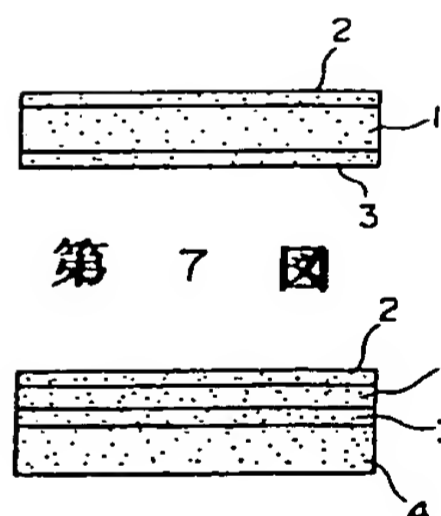


(b)

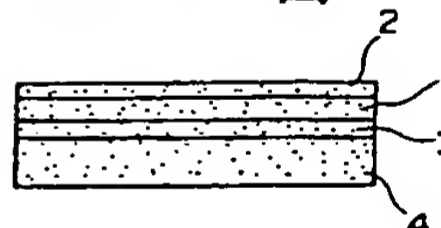
第 4 図



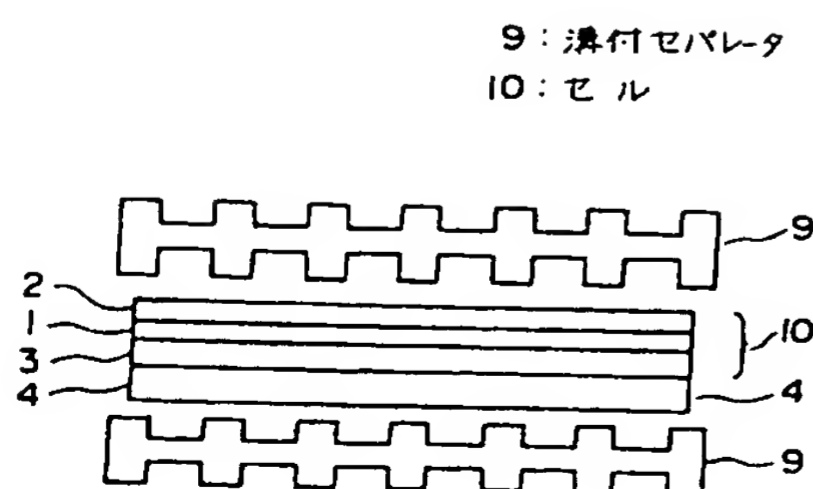
第 6 図



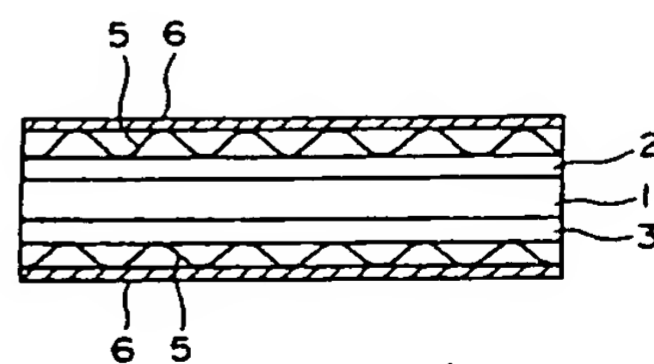
第 7 図



第 8 図



第 5 図



第 9 図

第1頁の続き

⑦発明者	門脇	琢哉	東京都千代田区丸の内1丁目1番2号	日本鋼管株式会社 内
⑦発明者	松田	英治	東京都千代田区丸の内1丁目1番2号	日本鋼管株式会社 内
⑦発明者	横須賀	剛一	東京都千代田区丸の内1丁目1番2号	日本鋼管株式会社 内